

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第3区分

【発行日】平成29年10月12日(2017.10.12)

【公表番号】特表2016-535800(P2016-535800A)

【公表日】平成28年11月17日(2016.11.17)

【年通号数】公開・登録公報2016-064

【出願番号】特願2016-521647(P2016-521647)

【国際特許分類】

C 09 K	11/64	(2006.01)
C 09 K	11/08	(2006.01)
C 09 K	11/80	(2006.01)
C 09 K	11/59	(2006.01)
F 21 V	9/16	(2006.01)
H 01 L	33/50	(2010.01)
F 21 Y	115/10	(2016.01)

【F I】

C 09 K	11/64	C P P
C 09 K	11/08	Z N M B
C 09 K	11/80	C Q D
C 09 K	11/08	J
C 09 K	11/59	
C 09 K	11/08	Z
F 21 V	9/16	1 0 0
H 01 L	33/50	
F 21 Y	115:10	

【手続補正書】

【提出日】平成29年8月30日(2017.8.30)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

無機物質を含む蛍光体であって、前記無機物質は、その組成において少なくとも元素D、元素A1、元素AX、元素SX及び元素NXを含み、ここで、

- Dは、Mn、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、アルカリ金属及びYbの群からなる1つ、2つ又はそれ以上の元素を表し、

- A1は、Dに含まれていない、二価金属の群からなる1つ、2つ又はそれ以上の元素を表し、

- SXは、四価金属の群からなる1つ、2つ又はそれ以上の元素を表し、

- AXは、三価金属の群からなる1つ、2つ又はそれ以上の元素を表し、及び

- NXは、O、N、S、C、Cl、Fの群からなる1つ、2つ又はそれ以上の元素を表し、及び前記無機物質は、Sr(SraCa1-a)Si2Al2N6と同じ結晶構造を示し、かつ空間群P1、P2、P21又は

## 【請求項2】

前記無機物質は、単斜晶の空間群P2<sub>1</sub>で結晶化する、請求項1に記載の蛍光体。

## 【請求項3】

前記無機物質は、次の一般式：

$$(D_a A 1_b) (D_c A 1_d) S X_e A X_f N X_g$$

[式中、a+b=1及びc+d=1及びここでパラメータa、b、c、d、e、f及びgは、次の条件を満たし、ここで、0<a<0.5; 0<c<0.5; 0<b<1; 0<d<1; a+c>0; b+d<2; 0<e<8; 0<f<16; 0<g<8 (f+4/3e+2/3(b+d))及びg=1.2(f+4/3e+2/3(b+d))、ここで、0<a<0.1及び0<c<0.1であることができる]

によって記載される、請求項1又は2に記載の蛍光体。

## 【請求項4】

一般式

$$A 1 (A 1_a M_{1-a}) S X_2 A X_2 N X_6 : D$$

[式中、Mは、A1とは異なる二価の金属元素であり、及びパラメータaは0.6~1.0である]で表される、請求項1から3までのいずれか1項に記載の蛍光体。

## 【請求項5】

一般式：

$$S r_{(1-x-h)} (S r_a M_{1-a})_{(1-y-i)} A_{(x+y)} B_{(h+i)/2} E_{(h+i)/2} S i_{(2-z)} G_z A l_2 N_6 : D$$

又は

$$S r_{(1-x-h)} (S r_a M_{1-a})_{(1-y-i)} A_{(x+y)} B_{(h+i)/2} E_{(h+i)/2} S i_{(2-z)} G_z A l_2 (N, X)_6 : D$$

又は

$$S r_{(1-x-h)} (S r_a M_{1-a})_{(1-y-i)} A_{(x+y)} B_{(h+i)/2} E_{(h+i)/2} S i_{(2-z)} G_z A l_{2-v} L_v (N, X)_6 : D$$

[式中、

- Mは、Ca、Ba、Mgから、単独で又は組み合わせて選択され、
- Aは、Mとは異なる二価金属から選択され、
- Bは三価金属であり、かつ
- Eは一価金属であり、ここで、
- 0<x+y<0.4及び0<h+i<0.4が当てはまり、
- Dは、Mn、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、アルカリ金属及びYbの群からなる1つ、2つ又はそれ以上の元素であり、
- Xは、O又はハロゲンであり、
- Gは、Siを置き換える四価元素であり、及びここで、0<z<1が当てはまり、
- Lは三価元素であり、及びここで、0<v<0.5が当てはまり、かつ
- aは0.6~1.0である]で表される、請求項1から4までのいずれか1項に記載の蛍光体。

## 【請求項6】

- Aは、Cu、Zn又はこれらの組み合わせから選択され、
- BはLaであり、かつ
- EはLiであり、ここで、
- 0.04<x+y<0.3及び0.04<h+i<0.3が当てはまり、
- Dは、Eu、Ce、Li、Mn及びこれらの組み合わせから選択され、
- Gは、Siを置き換えるC又はGeであり、及びここで、0<z<0.5が当てはまり、
- Lは、B、Ga又はInであり、及びここで、0<v<0.5が当てはまる、請求項5に記載の蛍光体。

## 【請求項7】

一般式：

$Sr_{(1-x)}(Sr_aM_{1-a})_{(1-y)}B_{(x+y)}Si_2-(x+y)Al_{2+(x+y)}(N, X)_6 : D$

[式中、]

- Mは、Ca、Ba、Mgから、単独で又は組み合わせて選択され、

- Bは三価金属であり、

- Dは、Mn、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、アルカリ金属及びYbの群からなる1つ、2つ又はそれ以上の元素であり、

- Xは、O又はハロゲンであり、及びここで、 $0 < x+y < 0.4$ であり、及び

- aは、 $0.6 \sim 1.0$ である]で表される、請求項1から5までのいずれか1項に記載の蛍光体。

【請求項8】

- BはLaであり、

- Dは、Eu、Ce、Li、Mn及びこれらの組み合わせから選択され、及び

$0.04 < x+y < 0.3$ が当てはまる、請求項7に記載の蛍光体。

【請求項9】

一般式

$Sr(Sr_aM_{1-a})Si_2Al_2N_6 : D$

で表され、Mは、Ca、Ba、Zn、Mgの群から選択され、及びaは $0.6 \sim 1.0$ である、請求項1から5まで又は請求項7のいずれか1項に記載の蛍光体。

【請求項10】

aは $0.8 \sim 1.0$ である、請求項9に記載の蛍光体。

【請求項11】

式：

$Sr(Sr_aCa_{1-a})Si_2Al_2N_6 : D$

で表され、Dは、Mn、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、アルカリ金属及びYbの群からなる1つ、2つ又はそれ以上の元素であり、及びaは $0.6 \sim 1.0$ である、請求項1から5まで、請求項7、9又は10のいずれか1項に記載の蛍光体。

【請求項12】

Dは、Euであるか又はDは、Eu及び1つ又はそれ以上のアルカリ金属である、請求項1から11までのいずれか1項に記載の蛍光体。

【請求項13】

前記アルカリ金属はLiである、請求項12に記載の蛍光体。

【請求項14】

一般式：

$Sr(Sr_aM_{1-a})Si_2Al_2(N, X)_6 : D, A, B, E, G, L$

で表される蛍光体であって、ここで、

- Mは、Ca、Ba、Mgから、単独で又は組み合わせて選択され、

- Dは、Mn、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、アルカリ金属及びYbの群からなる1つ、2つ又はそれ以上の元素であり、

- Aは、M及びDとは異なる二価金属から選択され、

- Bは三価金属であり、

- Eは一価金属であり、

- Gは四価元素であり、

- Lは三価元素であり、

- Xは、O又はハロゲンであり、

- パラメータaは、 $0.6 \sim 1.0$ であり、及び前記蛍光体は空間群P1、P2、

## 【請求項 15】

一般実験式

 $Sr(Sr_aM_{1-a})Si_2Al_2N_6: D$ 

で表される蛍光体であって、ここで、

- Mは、Ca、Ba、Zn、Mg及び/又はLiからなる群から選択され、- Dは、Mn、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Tb、Dy、Ho、Er、Tm及びYbから選択され、

パラメータaは、0.6~1.0であり、及び前記蛍光体は空間群P1、P2、

P1

又はP2<sub>1</sub>で結晶化する、蛍光体。

## 【請求項 16】

Dは、Eu及びCeから選択される、請求項15に記載の蛍光体。

## 【請求項 17】

パラメータaは0.8~1.0である、請求項14又は15記載の蛍光体。

## 【請求項 18】

Dの濃度は、アルカリ土類金属の濃度を基準として、0.1モル%~20モル%である、請求項5から17までのいずれか1項に記載の蛍光体。

## 【請求項 19】

Dの濃度は、アルカリ土類金属の濃度を基準として、1モル%~10モル%である、請求項18に記載の蛍光体。

## 【請求項 20】

次の工程：

A) 固体として存在する、Sr、Al、Si及びEuのための出発材料、並びに任意にCaのための出発材料、及び場合により元素A、B、E、L及びGのための出発材料を準備する工程、

B) 前記出発材料を混合する工程、

C) 前記出発材料を、不活性ガス雰囲気下で又はフォーミングガス雰囲気下で、少なくとも1500に加熱し、かつ焼成ケーキを形成する工程、及び

D) 前記焼成ケーキを粉碎して蛍光体にする工程

を有する、請求項5から19までのいずれか1項記載の蛍光体の製造方法。

## 【請求項 21】

赤色光を発光するための蛍光体であって、一般実験式  $Sr_xCa_{1-x}AlSiN_3: Eu$  (式中、0.8 < x < 1)を示し、Sr格子サイト、Ca格子サイト及び/又はSr/Ca格子サイトの、境界値を含めて0.1%~5%は、Euに置き換えられていて、ここで、X線構造分析において、前記蛍光体は、斜方晶の記述でミラー指数

## 【数1】

121

を示す反射(R)を示す、赤色光を発光するための蛍光体。

## 【請求項 22】

0.85 &lt; x &lt; 0.95、及びSr格子サイトの、境界値を含めて0.35%~2.2%は、Euに置き換えられている、請求項21に記載の蛍光体。

## 【請求項 23】

Cu-K<sub>1</sub>-放射線を用いた単色照射の際の粉末回折図において、36.7°~37.7°の2で、ミラー指数

## 【数2】

121

を示す反射(R)を示す、請求項21又は22に記載の蛍光体。

## 【請求項 2 4】

前記反射 (R) は、主反射を基準として、境界値を含めて 0.3 % ~ 8 % の強度を示す、請求項 2 3 に記載の蛍光体。

## 【請求項 2 5】

前記蛍光体は、境界値を含めて 596 nm ~ 606 nm の主波長を示し、前記蛍光体から発せられた放射線スペクトルの、最大値の半分の高さでの幅は、境界値を含めて 75 nm ~ 87 nm であり、かつ前記蛍光体は、境界値を含めて 410 nm ~ 450 nm の波長領域で、相対的な吸収極大を示し、かつ放射線を発するために青色光で励起可能である、請求項 2 1 から 2 4 までのいずれか 1 項に記載の蛍光体。

## 【請求項 2 6】

次の工程：

- A) 固体として存在する、Sr、Al、Si 及び Eu のための出発材料、並びに任意に Ca のための出発材料を準備する工程、
- B) 前記出発材料を混合する工程、
- C) 前記出発材料を、窒素雰囲気下で又はフォーミングガス雰囲気下で、少なくとも 1500 ℃ に加熱し、かつ焼成ケーキを形成する工程、及び
- D) 前記焼成ケーキを粉碎して蛍光体にする工程

を有する、請求項 2 1 から 2 4 までのいずれか 1 項に記載の蛍光体の製造方法。

## 【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0342

【補正方法】変更

【補正の内容】

## 【0342】

ここに記載された発明は、実施例に基づく記載によって制限されるものではない。むしろ、本発明は、全ての新規の特徴並びにこれらの特徴の全ての組み合わせを有し、これは、特に、これらの特徴又はその組合せが特許請求の範囲又は実施例に明確には記載されていない場合であっても、特許請求の範囲の特徴の全ての組合せを含むものとする。

以下に、好ましい実施形態が記載される：

## 好ましい実施形態

1. 無機物質を含む蛍光体であって、前記無機物質は、その組成において少なくとも元素 D、元素 A1、元素 AX、元素 SX 及び元素 NX (ここで、D は、Mn、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、アルカリ金属 (Li、Na、K、Rb、Cs) 及び Yb の群からなる 1 つ、2 つ又はそれ以上の元素を表し、A1 は、D に含まれていない、二価金属の群からなる 1 つ、2 つ又はそれ以上の元素を表し、SX は、四価金属の群からなる 1 つ、2 つ又はそれ以上の元素を表し、AX は、三価金属の群からなる 1 つ、2 つ又はそれ以上の元素を表し、及び NX は、O、N、S、C、Cl、F の群からなる 1 つ、2 つ又はそれ以上の元素を表す) を含み、及び Sr (Sr<sub>a</sub>Ca<sub>1-a</sub>) Si<sub>2</sub>Al<sub>2</sub>N<sub>6</sub> と同じ結晶構造を示す、蛍光体。

2. 前記無機物質は、次の一般式：

$$(D_a A_{1-b}) (D_c A_{1-d}) S X_e A X_f N X_g$$

[式中、a + b = 1 及び c + d = 1 及びここでパラメータ a、b、c、d、e、f 及び g は、次の条件を満たし、ここで、0 < a < 0.5；0 < c < 0.5；0 < b < 1；0 < d < 1；a + c > 0；b + d < 2；0 < e < 8；0 < f < 16；0 < g < 8 (f + 4 / 3e + 2 / 3 (b + d)) < g；及び g = 1.2 (f + 4 / 3e + 2 / 3 (b + d))、ここで、0 < a < 0.1 及び 0 < c < 0.1 であることができる]

によって記載される、前記実施形態に記載の蛍光体。

3. 一般式：

$$Sr (Sr<sub>a</sub>M<sub>1-a</sub>) Si<sub>2</sub>Al<sub>2</sub>(N, X)<sub>6</sub> : D, A, B, E, G, L$$

[式中、M は、Ca、Ba、Mg から、単独で又は組み合わせて選択され、A は、M 及び

Dとは異なる二価金属から選択され、Bは三価金属であり、Eは一価金属であり、Gは四価元素であり及びLは三価元素である]で表される蛍光体。

4. 一般式  $A_1 (A_{1-a}M_{1-a})_S X_2 A X_2 N X_6 : D$

で表される、前記実施形態のいずれか1つに記載の蛍光体。

5. パラメータaは、0.6~1.0、若しくは、0.8~1.0である、前記実施形態4に記載の蛍光体。

6. 一般式：

$S r_{(1-x-h)} (S r_a M_{1-a})_{(1-y-i)} A_{(x+y)} B_{(h+i)/2} E_{(h+i)/2} S i_{(2-z)} G_z A l_2 N_6 : D$

[式中、Mは、Ca、Ba、Mgから、単独で又は組み合わせて選択され、Aは、Mとは異なる二価金属、例えばCu、Zn又はこれらの組み合わせから選択され、Bは三価金属、例えばLaであり、Eは一価金属、例えばLiであり、ここで、0  $x+y$  0.4、好ましくは0.04  $x+y$  0.3、及び0  $h+i$  0.4、好ましくは0.04  $h+i$  0.3が当てはまる]で表される、前記実施形態のいずれか1つに記載の蛍光体。

7. 一般式：

$S r_{(1-x)} (S r_a M_{1-a})_{(1-y)} B_{(x+y)} S i_{2-(x+y)} A l_{2+(x+y)} (N, X)_6 : D$

[式中、Bは三価金属、例えばLaであり、かつ0  $x+y$  0.4、好ましくは0.04  $x+y$  0.3が当てはまる]で表される、前記実施形態1から5までのいずれか1つに記載の蛍光体。

8. 一般式：

$S r_{(1-x-h)} (S r_a M_{1-a})_{(1-y-i)} A_{(x+y)} B_{(h+i)/2} E_{(h+i)/2} S i_{(2-z)} G_z A l_2 (N, X)_6 : D$  又は

$S r_{(1-x)} (S r_a M_{1-a})_{(1-y)} B_{(x+y)} S i_{2-(x+y)} A l_{2+(x+y)} (N, X)_6 : D$

[Mは、Ca、Ba、Mgから、単独で又は組み合わせて選択され、Aは、Mとは異なる二価金属、例えばCu、Zn又はこれらの組み合わせから選択され、Bは三価金属、例えばLaであり、Eは一価金属、例えばLiであり、ここでDは、Mn、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、アルカリ金属及びYbの群からなる1つ、2つ又はそれ以上の元素であり、好ましくはEu、Ce、Li、Mn及びこれらの組み合わせから選択される]で表される、前記実施形態のいずれか1つに記載の蛍光体。

9. Dは、Eu及び1つ又はそれ以上のアルカリ金属、好ましくはLiである、前記実施形態8に記載の蛍光体。

10. 一般式  $S r (S r_a M_{1-a}) S i_2 A l_2 N_6 : D$  で表され、Mは、Ca、Ba、Zn、Mgの群から選択される、前記実施形態のいずれか1つに記載の蛍光体。

11. 式： $S r (S r_a C a_{1-a}) S i_2 A l_2 N_6 : D$  で表され、Dは、Mn、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb及びLuの群から、それぞれ単独で又はそれらの組み合わせで選択される少なくとも1つの付活元素である、前記実施形態のいずれか1つに記載の蛍光体。

12. 付活元素の濃度は、アルカリ土類金属の濃度を基準として、0.1モル%~20モル%、好ましくは0.1モル%~10モル%、又は1モル%~10モル%である、前記実施形態のいずれか1つに記載の蛍光体。

13. 次の工程：

A) 固体として存在する、Sr、Al、Si及びEuのための出発材料、並びに任意にCaのための出発材料、及び場合により元素A、B、E、L及びGのための出発材料を準備する工程、

B) 前記出発材料を混合する工程、

C) 前記出発材料を、不活性ガス雰囲気下で、好ましくは窒素雰囲気下で又はフォーミングガス雰囲気下で、少なくとも1500に加熱し、かつ焼成ケーキを形成する工程、及び

D) 前記焼成ケーキを粉碎して蛍光体にする工程

を有する、前記実施形態のいずれか1つに記載の蛍光体の製造方法。

14. Sr、Al及び/又はCaのための出発材料として、純金属、金属合金、ケイ化物、窒化物、水素化物、酸窒化物、酸化物、ハロゲン化物又はこれらの混合物を使用し、ここでSiのための出発材料として、ケイ素金属、窒化ケイ素、アルカリ土類金属ケイ化物、シリコンジイミド又はこれらの混合物を使用し、かつEuのための出発材料として、次の物質：ユウロピウム金属、酸化ユウロピウム、窒化ユウロピウム、水素化ユウロピウム、ハロゲン化ユウロピウムの少なくとも1つを使用する、前記実施形態13に記載の方法。

15. 工程c)において、融剤及び/又はフラックスとして、次の物質：LiF、LiCl、NaF、NaCl、SrCl<sub>2</sub>、SrF<sub>2</sub>、CaCl<sub>2</sub>、CaF<sub>2</sub>、BaCl<sub>2</sub>、BaF<sub>2</sub>、NH<sub>4</sub>Cl、NH<sub>4</sub>F、KF、KCl、MgF<sub>2</sub>、MgCl<sub>2</sub>、AlF<sub>3</sub>、H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>、B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>、NaBO<sub>2</sub>、Na<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>、LiBF<sub>4</sub>、NH<sub>4</sub>HF<sub>2</sub>、NaBF<sub>4</sub>、KB<sub>2</sub>F<sub>4</sub>、及びEuF<sub>3</sub>の少なくとも1つが添加されている、実施形態13又は14に記載の方法。

16. 工程D)に続く工程E)において、蛍光体の焼成を、少なくとも1500の温度でフォーミングガス雰囲気下で行う、実施形態13から15までのいずれか1つに記載の方法。

17. 少なくとも1500の温度を、工程C)及び/又は工程E)において少なくとも2時間保持する、実施形態13から16までのいずれか1つに記載の方法。

18. 出発材料として、Ca<sub>3</sub>N<sub>2</sub>、Sr<sub>3</sub>N<sub>2</sub>、AlN、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>、及びEu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、及び場合により、Mn<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、CuO、Zn<sub>3</sub>N<sub>2</sub>、La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>及び黒鉛を使用し、ここで、次の原子比：

Sr : Ca : Al : Si : Eu = (1 + a) : (1 - a) : 2 : 2 : y

が存在するように秤量を行い、ここで、yは、Euによって置き換えられる二価の格子サイトの割合であり、ここで、工程B)を、窒素雰囲気中で酸素不含及び水不含で実施し、フラックスとして、AlF<sub>3</sub>、Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>及び/又はLiBF<sub>4</sub>を添加し、ここで、工程C)を、N<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>雰囲気下で、1650 ± 50の温度で少なくとも3時間実施し、かつ、ここで、少なくとも工程C)を、境界値を含めて0.9bar ~ 1.5barの圧力で実施する、実施形態13から17までのいずれか1つに記載の方法。

19. 実施形態1から12まで及び20から21までのいずれか1つに記載の蛍光体の、発光ダイオード中の使用において、前記発光ダイオードは、作動時に青色光を発する少なくとも1種の半導体チップを有し、前記蛍光体は、光路に沿って前記半導体チップの下流に配置されている、蛍光体の発光ダイオード中の使用。

20. 一般実験式Sr(Sr<sub>a</sub>M<sub>1-a</sub>)Si<sub>2</sub>Al<sub>2</sub>N<sub>6</sub> : D

[式中、Mは、Ca、Ba、Zn、Mg及び/又はLiからなる群から選択される]の蛍光体。

21. Dは、Mn、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Tb、Dy、Ho、Er、Tm及びYbから選択され、好ましくはDは、Ce及びEuである、前記実施形態20に記載の蛍光体。

22. - 300nm ~ 570nmの波長領域で一次放射線を発する放射源(35)、- 前記一次放射源(35)の光路中に配置されていて、かつ前記一次放射線の少なくとも一部を、570nm ~ 800nm、好ましくは580nm ~ 700nm、更に好ましくは590nm ~ 650nmのオレンジ色~赤色の波長領域の二次放射線に変換する、実施形態1から12まで及び20から21までのいずれか1つに記載の第1の蛍光体(40)）

を有する、照明装置(30)。

23. 更に、

- 前記一次放射源の光路中に配置されていて、かつ第1の蛍光体とは異なる発光を示す第2の蛍光体(45)

を有する、前記実施形態22に記載の照明装置(30)。

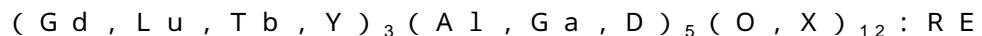
## 24. 更に、

- 二次放射線の光路中に配置されていて、かつ前記二次放射線の少なくとも一部を吸收しかつ変換する第2の蛍光体(45)

を有する、前記実施形態22又は23に記載の照明装置(30)。

25. - 第2の蛍光体が、元素M、A、D、E及びXを有し、ここで、Mは、Mn、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Tb、Dy、Ho、Er、Tm及びYbからなる群から選択される1つ又はそれ以上の元素であり、Aは、Mとは異なる二価金属元素からなる群から選択される1つ又はそれ以上の元素であり、Dは、四価金属元素からなる群から選択される1つ又はそれ以上の元素であり、Eは、三価金属元素からなる群から選択される1つ又はそれ以上の元素であり、Xは、O、N、及びFからなる群から選択される1つ又はそれ以上の元素であり、かつ、 $\text{CaAlSiN}_3$ と同じ結晶構造を有する、前記実施形態22から24までのいずれか1つに記載の照明装置(30)。

26. 第2の蛍光体が、一般構造式:



[式中、Xは、ハロゲン化物、N又は二価元素であり、Dは、三価元素又は四価元素であり、かつREは、付活剤としての希土類金属、特に任意の共ドーパントを有するセリウムである]を示す、前記実施形態22から24までのいずれか1つに記載の照明装置(30)。

27. - 一般式 $(\text{Gd}, \text{Lu}, \text{Tb}, \text{Y})_3(\text{Al}, \text{Ga}, \text{D})_5(\text{O}, \text{X})_{12} : \text{RE}$ [式中、Xは、ハロゲン化物又は二価元素であり、Dは、三価元素又は四価元素であり、かつREは、付活剤としての希土類金属、特に任意の共ドーパントを有するセリウムである]

の第2の蛍光体を有し、

- 第2の蛍光体は、一次放射源(35)の光路中に配置されている、  
フラッシュ用途に適した、前記実施形態22に記載の照明装置(30)。

28. - 第2の蛍光体は、希土類金属を基準としてそれぞれ、0.5~5モル%、好ましくは0.5~2モル%のセリウム割合及び0~0.5、好ましくは0.15~0.3のガリウム割合xを有する、一般式 $\text{Lu}_3(\text{Al}_{1-x}\text{Ga}_x)_5\text{O}_{12} : \text{Ce}$ 、又は $(\text{Lu}, \text{Y})_3(\text{Al}_{1-x}\text{Ga}_x)_5(\text{O})_{12} : \text{Ce}$ を示す、

フラッシュ用途に適した、前記実施形態27に記載の照明装置(30)。

29. - 第2の蛍光体は、1.5~5モル%、好ましくは2.5~5モル%のセリウム割合及び0~0.5のガリウム割合x、好ましくは0~0.1のガリウム割合xを有する、一般式 $(\text{Gd}, \text{Y})_3(\text{Al}_{1-x}\text{Ga}_x)_5\text{O}_{12} : \text{Ce}$ 、又は $(\text{Tb}, \text{Y})_3(\text{Al}_{1-x}\text{Ga}_x)_5(\text{O})_{12} : \text{Ce}$ を示す、

フラッシュ用途に適した、前記実施形態22に記載の照明装置(30)。

30. - さらに、第2の放射源が存在し、第2の放射源の光路中に、第2の放射源の一次放射線を二次放射線に変換する蛍光体が配置されていて、かつ

- 第1の放射源の二次放射線と、第2の放射源の二次放射線との混合により、前記照明装置の全体の発光放射線が生じる、

フラッシュ用途に適した、前記実施形態26から29までのいずれか1つに記載の照明装置(30)。

31. - 第2の放射源の変換された放射線の色域は、第1の放射源の変換された放射線の色域とは異なる、

フラッシュ用途に適した、前記実施形態30に記載の照明装置(30)。

32. - 第1の放射源と第2の放射源とは異なる電流強度で作動可能であり、かつ第1の放射源と第2の放射源との異なる電流強度によって、前記照明装置の全体の発光放射線の色域が調節可能である、

フラッシュ用途に適した、前記実施形態31に記載の照明装置(30)。

33. - 第1の放射源の蛍光体と第2の放射源の蛍光体とは、光学素子、好ましくはレンズの下流に配置されていて、前記光学素子は、第1の放射源の二次放射線と第2の放

射源の二次放射線とを混合して、全体の発光放射線を生成する、

フラッシュ用途に適した、前記実施形態31又は32に記載の照明装置(30)。

34. - 第1の蛍光体は、一般式 $Sr_aCa_{1-a}Si_2Al_2N_6:D$ (式中、0.7a、好ましくは0.8a、更に好ましくは0.84aである)を示し、かつ - 第2の蛍光体として、一般式 $(Gd,Lu,Y;Tb)_3(Al,Ga)_5(O)_{12}:RE$ (式中、REは、希土類金属、好ましくはCeである)のガーネットが存在する、CRI80を有する白色光を生成するための、前記実施形態22に記載の照明装置。

35. - 第2の蛍光体は、一般式 $Y_3(Al_{1-x}Ga_x)_5(O)_{12}:Ce$ (式中、Gaの割合は、0.2×0.6、好ましくは0.3×0.5、更に好ましくは0.35×0.45である)を示す、

CRI80を有する白色光を生成するための、前記実施形態34に記載の照明装置。

36. - 前記放射源(35)は、430nm~470nm、好ましくは440nm~460nmの波長領域で一次放射線を発し、

- 第2の蛍光体として、一般式 $(Gd,Lu,Y,Tb)_3(Al,Ga)_5(O)_{12}:RE$ 、好ましくは $(Lu,Y)_3(Al,Ga)_5(O)_{12}:RE$ (式中、REは、希土類金属、好ましくはCeである)のガーネットが存在している、

CRI90を有する白色光を生成するための、実施形態22に記載の照明装置。

37. - 第1の蛍光体中で、金属Mは、Sr及びCaであり、パラメータaについて、0.7a、好ましくは0.8a、更に好ましくは0.84aが当てはまり、かつ付活剤Dの割合は、1.5%、好ましくは3.5%、更に好ましくは4.5%である、

CRI90を有する白色光を生成するための、前記実施形態36に記載の照明装置。

38. - 第2の蛍光体は、次の蛍光体：

- 一般式 $Si_{6-z}Al_zO_zN_{8-z}:Eu$ (式中、0<z<4)のベータ-SiAlON  
- 量子ドットとしてのナノ半導体材料、  
- 一般組成 $AE_{2-x}RE_xSiO_{4-x}N_x:Eu$ (式中、AEは、Sr、Ca、Ba、Mgであり、REは、希土類金属である)又は一般組成 $AE_{2-x}RE_xSi_{1-y}O_{4-x-2y}N_x:Eu$ のニトリド-オルトケイ酸塩

の群からの少なくとも1つの蛍光体から選択される、

実施形態22から24までのいずれか1項に記載の照明装置。

39. - 第1の蛍光体は、一般式 $Sr_aCa_{1-a}Si_2Al_2N_6:D$ (式中、0.7a、好ましくは0.8a、更に好ましくは0.84a、及び付活剤Dの割合は、2モル%、好ましくは3モル%、更に好ましくは4モル%である)を示し、かつ

- 第2の蛍光体は、一般式 $Y_3(Al_{1-x}Ga_x)_5O_{12}:Ce$ (式中、0.2×0.6、好ましくは0.3×0.5、更に好ましくは0.3×0.45)又は $Lu_3(Al_{1-x}Ga_x)O_{12}:Ce$ (式中、0×0.6、好ましくは0×0.4、更に好ましくは0×0.25)を示し、かつ希土類金属を基準としてそれぞれ0.5~5モル%、好ましくは0.5~3モル%、更に好ましくは0.5~2.5モル%のCe割合を有する、

バックライト用途に適した、実施形態23又は24に記載の照明装置。

40. - 第1の蛍光体は、一般式 $Sr_aCa_{1-a}Si_2Al_2N_6:D$ (式中、0.7a、好ましくは0.8a、更に好ましくは0.84a、及び付活剤Dの割合は、4モル%、好ましくは8モル%、更に好ましくは10モル%である)を示し、かつ

- 第2の蛍光体は、ベータ-SiAlONの $Si_{6-x}Al_zO_yN_{8-y}:RE$ (式中、 $0 < x < 4$ 、 $0 < y < 4$ 、 $0 < z < 1$ 、及びREは、希土類金属から選択される1種以上の元素、好ましくは少なくともEu及び/又はYbを含む)を示す、

バックライト用途に適した、実施形態23又は24に記載の照明装置。

41. - 第1の蛍光体は、一般式 $Sr_aCa_{1-a}Si_2Al_2N_6:D$ (式中、

0.7 a、好ましくは0.8 a、更に好ましくは0.84 a、及び付活剤Dの割合は、4モル%、好ましくは8モル%、更に好ましくは10モル%である)を示し、かつ

- 第2の蛍光体は、一般式 $A_{2-x}L_xSiO_{4-x}N_x:RE$ 及び/又は $A_{2-x}L_xSi_{1-y}O_{4-x-2y}N_x:RE$ 及び/又は $AE_2SiO_4:RE$ (式中、AEは、Mg、Ca、Sr、Baからなる1種以上の元素を含み、かつREは、希土類金属から選択される1種以上の元素、好ましくは少なくともEuを含み、かつLは、REとは異なる希土類金属から選択される1種以上の元素を含み、 $0 < x \leq 0.1$ 、好ましくは $0.003 \leq x \leq 0.02$ 及び $0 < y \leq 0.1$ 、好ましくは $0.002 \leq y \leq 0.02$ )を示す

バックライト用途に適した、実施形態23又は24に記載の照明装置。

42. 第2の蛍光体は、AEとして、少なくともSr及びBaを含み、かつSrとBaとの比率について、 $0.5 \leq Ba : Sr \leq 2$ 、好ましくは $0.75 \leq Ba : Sr \leq 1.25$ が当てはまる、

バックライト用途に適した、前記実施形態41に記載の照明装置。

43. - 第1の蛍光体は、一般式 $Sr_aCa_{1-a}Si_2Al_2N_6:D$ (式中、0.7 a、好ましくは0.8 a、更に好ましくは0.84 a、及び付活剤Dの割合は、4モル%、好ましくは8モル%、更に好ましくは10モル%である)を示し、かつ

- 第2の蛍光体は、ナノ結晶質材料の形の量子ドットを含み、前記ナノ結晶質材料は、II-VI族系化合物及び/又はIIII-V族系化合物及び/又はIV-VI族系化合物及び/又は金属ナノ結晶を含み、これらは、一次放射線で励起した場合に、500~560nm、好ましくは510~550nm、更に好ましくは520~540nmのピーク波長を有する緑色~黄色のスペクトル領域の二次放射線を発する、

バックライト用途に適した、前記実施形態23又は24に記載の照明装置。

44. 第1の蛍光体(40)は、第1のマトリックス材料(50)中に埋め込まれている、前記実施形態22から43までのいずれか1つに記載の照明装置。

45. 第1のマトリックス材料(50)は、ガラス、シリコーン、エポキシ樹脂、ポリシラザン、ポリメタクリラート及びポリカルボナート、並びにこれらの組み合わせの材料の群から選択される、前記実施形態44に記載の照明装置。

46. - 第1の蛍光体及び/又は第2の蛍光体は、粒子として存在し、かつ $5 \sim 30 \mu m$ の平均粒度を有する、前記実施形態22から43までのいずれか1つに記載の照明装置。

47. 第1及び/又は第2の蛍光体(40)は、セラミック変換エレメントとして存在する、前記実施形態22から43までのいずれか1つに記載の照明装置。

48. 第2の蛍光体(45)は、第2のマトリックス材料(55)中に埋め込まれている、前記実施形態23から43までのいずれか1つに記載の照明装置。

49. 第1の蛍光体(40)及び第2の蛍光体(45)は、互いに混合されている、前記実施形態23から43までのいずれか1つに記載の照明装置。

50. 第1の蛍光体(40)及び/又は第2の蛍光体(45)は、前記放射源から隔てられている、前記実施形態22から49までのいずれか1つに記載の照明装置。

51. 前記放射源は、LED、OLED又はレーザーを含む、前記実施形態22から50までのいずれか1つに記載の照明装置。

52. 更に、一次放射線及び/又は部分的に二次放射線を吸収するフィルタ又はフィルタ粒子が存在する、前記実施形態22から51までのいずれか1つに記載の照明装置。

53. 赤色光を発光するための蛍光体であって、一般実験式 $Sr_xCa_{1-x}AlSiN_3:Eu$ (式中、 $0.8 < x \leq 1$ )を示し、Sr格子サイト、Ca格子サイト及び/又はSr/Ca格子サイトの、境界値を含めて $0.1\% \sim 5\%$ は、Euに置き換えられていて、ここで、X線構造分析において、前記蛍光体は、斜方晶の記述でミラー指数

【数9】

121

を示す反射(R)を示す、赤色光を発光するための蛍光体。

54. 0.85 × 0.95、及びSr格子サイトの、境界値を含めて0.35%～2.2%は、Euに置き換えられている、前記実施形態53に記載の蛍光体。

55. Cu-K<sub>1</sub>-放射線を用いた単色照射の際の粉末回折図において、36.7°～37.7°の2で、ミラー指数

【数10】

121

を示す反射(R)を示す、前記実施形態53又は54に記載の蛍光体。

56. 前記反射(R)は、主反射を基準として、境界値を含めて0.3%～8%の強度を示す、前記実施形態55に記載の蛍光体。

57. 前記蛍光体は、境界値を含めて596nm～606nmの主波長を示し、前記蛍光体から発せられた放射線スペクトルの、最大値の半分の高さでの幅は、境界値を含めて75nm～87nmであり、かつ前記蛍光体は、境界値を含めて410nm～450nmの波長領域で、相対的な吸収極大を示し、かつ放射線を発するために青色光で励起可能である、前記実施形態53から56までのいずれか1つに記載の蛍光体。

58. 次の工程：

A) 固体として存在する、Sr、Al、Si及びEuのための出発材料、並びに任意にCaのための出発材料を準備する工程、

B) 前記出発材料を混合する工程、

C) 前記出発材料を、窒素雰囲気下で又はフォーミングガス雰囲気下で、少なくとも1500に加熱し、かつ焼成ケーキを形成する工程、及び

D) 前記焼成ケーキを粉碎して蛍光体にする工程

を有する、前記実施形態53から57までのいずれか1つに記載の蛍光体の製造方法。

59. Sr、Al及び/又はCaのための出発材料として、純金属、金属合金、ケイ化物、窒化物、酸窒化物、酸化物、ハロゲン化物又はこれらの混合物を使用し、ここでSiのための出発材料として、ケイ素金属、窒化ケイ素、アルカリ土類金属ケイ化物、シリコンジイミド又はこれらの混合物を使用し、かつEuのための出発材料として、次の物質：ユウロピウム金属、酸化ユウロピウム、窒化ユウロピウム、ハロゲン化ユウロピウムの少なくとも1つを使用する、前記実施形態58に記載の方法。

60. 工程c)において、融剤及び/又はフラックスとして、次の物質：LiF、LiCl、NaF、NaCl、SrCl<sub>2</sub>、SrF<sub>2</sub>、CaCl<sub>2</sub>、CaF<sub>2</sub>、BaCl<sub>2</sub>、BaF<sub>2</sub>、NH<sub>4</sub>Cl、NH<sub>4</sub>F、KF、KC<sub>1</sub>、MgF<sub>2</sub>、MgCl<sub>2</sub>、AlF<sub>3</sub>、H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>、B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>、Na<sub>2</sub>BO<sub>2</sub>、Na<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>、LiBF<sub>4</sub>の少なくとも1つが添加されている、実施形態58又は59に記載の方法。

61. 工程D)に続く工程E)において、蛍光体の焼成を、少なくとも1500の温度でフォーミングガス雰囲気下で行う、実施形態58から60までのいずれか1つに記載の方法。

62. 少なくとも1500の温度を、工程C)及び/又は工程E)において少なくとも2時間保持する、実施形態58から61までのいずれか1つに記載の方法。

63. 出発材料として、Ca<sub>3</sub>N<sub>2</sub>、Sr<sub>3</sub>N<sub>2</sub>、AlN、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>及びEu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を使用し、

ここで、次の原子比：Ca : Sr : Al : Si : Eu = (1 - x) : x : 1 : 3 : yが存在するように秤量を行い、

ここで、yは、Euによって置き換えられるSr格子サイトの割合であり、

ここで、工程B)を、窒素雰囲気中で酸素不含及び水不含で実施し、

ここで、フラックスとして、AlF<sub>3</sub>、Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>及び/又はLiBF<sub>4</sub>を添加し、

ここで、工程 C ) を、  $N_2 / H_2$  霧囲気下で、  $1650 \pm 50$  の温度で少なくとも 3 時間実施し、

かつここで、少なくとも工程 C ) を、境界値を含めて  $0.9 \text{ bar} \sim 1.5 \text{ bar}$  の圧力で実施する、実施形態 58 から 62 までのいずれか 1 つに記載の方法。

64. 実施形態 53 から 57 までのいずれか 1 つに記載の蛍光体の、発光ダイオード中の使用において、前記発光ダイオードは、作動時に青色光を発する少なくとも 1 種の半導体チップを有し、前記蛍光体は、光路に沿って前記半導体チップの下流に配置されている、蛍光体の発光ダイオード中の使用。

【手続補正 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0020

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0020】

G は、 Si を置き換える四価元素、例えば C 又は Ge を表し、ここで、パラメータ  $z$  は次のとおり： 0  $\leq z \leq 1$ 、又は 0  $\leq z \leq 0.5$ 、又は 0.02  $\leq z \leq 0.3$  が当てはまり、ここで  $z$  は特に 0.02 又は 0.4 であることができるか、又は四価元素は存在しなくてもよいので、 $z = 0$  である。元素 L についてのパラメータ  $v$  は、次の値を取ることができる： 0  $\leq v \leq 1$ 、更に 0  $\leq v \leq 0.5$ 。